



⑮ BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

⑫ **Offenlegungsschrift**
⑩ **DE 43 26 521 A 1**

⑳ Aktenzeichen: P 43 26 521.9
㉔ Anmeldetag: 6. 8. 93
㉕ Offenlegungstag: 17. 2. 94

⑤① Int. Cl.⁵:
C 08 L 21/00
C 08 J 3/20
C 08 F 2/44
F 21 V 3/00
F 21 V 8/00
// C08L 33/08, B60Q
1/26, 3/00, B63B
45/00, C12M 3/00,
C02F 1/32

DE 43 26 521 A 1

③① Unionspriorität: ③② ③③ ③①
10.08.92 JP P 4-234203 10.08.92 JP P 4-234204

⑦① Anmelder:
Bridgestone Corp., Tokio/Tokyo, JP

⑦④ Vertreter:
ter Meer, N., Dipl.-Chem. Dr.rer.nat.; Müller, F.,
Dipl.-Ing., 81679 München; Steinmeister, H.,
Dipl.-Ing.; Wiebusch, M., 33617 Bielefeld; Urner, P.,
Dipl.-Phys. Ing.(grad.); Merkle, G., Dipl.-Ing. (FH),
Pat.-Anwälte, 81679 München

⑦② Erfinder:
Ishiharada, Minoru, Kodaira, Tokio/Tokyo, JP;
Tanuma, Itsuo, Sayama, Saitama, JP; Naito, Kazuo,
Kawasaki, Kanagawa, JP

⑤④ Lichtstreuendes Material und Verfahren zu seiner Herstellung

⑤⑦ Ein lichtstrahlendes Material wird hergestellt durch Vermischen von Teilchen eines transparenten Materials mit und Dispergieren in einer transparenten Elastomermatrix. Die Matrix besitzt eine Tg von weniger als Raumtemperatur und das transparente Material besitzt einen von der Matrix verschiedenen Brechungsindex.

DE 43 26 521 A 1

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

BUNDESDRUCKEREI · 12. 93 308 067/463

11/49

Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein Material zur wirksamen Streuung von Licht, insbesondere ein lichtstreuendes Material zur Verwendung in Kombination mit einem lichtübertragenden beziehungsweise lichtdurchlässigen Schlauch und ein Verfahren zu seiner Herstellung.

Bekannte lichtstreuende Materialien zur wirksamen Übertragung und Streuung von Licht umfassen lichtstreuende Elemente in Form optischer Kunststoffasern, Illuminatoren und lichtstreuende Materialien von Metalldispersionssystemen.

Ein typisches lichtstreuendes Element aus einer optischen Kunststoffaser wird dadurch hergestellt, daß eine oder mehrere optische Kunststoffasern zu einer Bandform verarbeitet werden und etwa durch Feilen Kratzer auf der Außenoberfläche des Bandes ausgebildet werden, wodurch auf einem Ende des Bandes (Faser oder Fasern) einfallendes Licht aus dem Band durch solche Kratzer austritt und gestreut wird. Dieses lichtstreuende Element besitzt jedoch Streuungseigenschaften, die stark von der Verteilung der Kratzer abhängen und erzeugt eine stark variierende Menge an Streulicht. Um die Menge an Streulicht zu erhöhen, muß die Menge an einfallendem Licht gesteigert werden. Dies kann wiederum beispielsweise durch Erhöhung des Faserdurchmessers erzielt werden. Je größer der Durchmesser ist, desto weniger flexibel werden die optischen Kunststoffasern. Die obere Grenze des Durchmessers beträgt etwa 3 mm gemäß dem Stand der Technik. Dies begrenzt die Menge an einfallendem Licht und die Menge an Streulicht.

Illuminatoren in Form lichtstreuender Röhren unter Verwendung eines flüssigen Kerns werden in JP-A-80 910/1989 und JP-A-80 912/1989 beschrieben. Diese lichtstreuende Röhre umfaßt einen Mantel in Form eines hohlen flexiblen, rohrförmigen Elements, welcher mit einer Kernflüssigkeit mit einem höheren Brechungsindex als der Mantel gefüllt ist, wobei die sich gegenüberliegenden Öffnungen des Mantels durch Fensterelemente geschlossen sind. Licht tritt an einem oder beiden Enden der lichtstreuenden Röhre ein, wodurch Licht aufgrund von Streuung an der Kern-Mantel-Grenzfläche und/oder Rayleigh-Streuung in der Kernflüssigkeit austritt. Dieser Illuminator kann einen größeren Durchmesser aufweisen, ohne an Flexibilität zu verlieren. Ein großer wirksamer Lichtaufnahmebereich erlaubt einen wirksamen Eintritt und Austritt von Licht. Die Wirtschaftlichkeit ist ein anderer Vorteil.

Trotz dieser Vorteile besteht bei dem obengenannten Illuminator die Möglichkeit eines Zerbrechens oder Springens des Mantels und eines daraus resultierenden Auslaufens der Kernflüssigkeit während der Anwendung, was zu einem wesentlichen Verlust an Lichtemission führt. Die Lichtemission durch Streuung an der Kern-Mantel-Grenzfläche und/oder Rayleigh-Streuung in der Kernflüssigkeit ist im allgemeinen von einer geringen Lichtintensität begleitet, so daß eine starke Lichtquelle erforderlich ist, um die Lichtemissionsmenge zu erhöhen.

Die lichtstreuenden Materialien des Metalldispersionssystems werden hergestellt durch Dispergieren metallisierter Teilchen (beispielsweise durch Verdampfung von Metallen, wie etwa Aluminium, metallisierte Glaskügelchen) von Metallfolienflocken oder Metallteilchen in transparenten Harzen. Das Licht wird hierbei durch Lichtreflexion an den Metalloberflächen gestreut. Metalle besitzen jedoch im allgemeinen ein Reflexions-

vermögen von etwa 90 bis 95%, wobei Licht nach mehreren Reflexionen seine Intensität verliert. Da eine Anzahl von Reflexionen wiederholt wird, bis das Licht das lichtstreuende Material verläßt, ist das Licht hinsichtlich seiner Intensität wesentlich verringert, wenn es als Streulicht auftritt. Hinsichtlich den Streurichtungen tritt meistens eine Rückstreuung auf, wobei es schwierig ist, ein gesamtes Objekt über einen breiten Bereich zu beleuchten.

Ein Ziel der vorliegenden Erfindung ist daher die Bereitstellung eines lichtstreuenden Materials, welches flexibel ist, leicht zu handhaben ist, leicht zu verarbeiten und günstig herzustellen ist und bei der Lichtstreuung hocheffizient ist. Ein anderes Ziel ist die Bereitstellung eines Verfahrens zu dessen Herstellung.

Gemäß der Erfindung hat sich gezeigt, daß durch Vermischen mit und Dispergieren in einer transparenten Elastomermatrix mit einer Glasübergangstemperatur von weniger als Raumtemperatur eines transparenten Materials mit einem von der Matrix verschiedenen Brechungsindex; durch Vermischen mit und Dispergieren in einem Monomer, welches zu einem transparenten Elastomer mit einer Glasübergangstemperatur von weniger als Raumtemperatur polymerisierbar ist, eines transparenten Materials mit einem zum transparenten Elastomer verschiedenen Brechungsindex und Polymerisieren des Monomers; oder durch Vermischen mit und Dispergieren in einer transparenten Elastomermatrix mit einer Glasübergangstemperatur von weniger als Raumtemperatur eines Monomeren, welches zu einem Polymer mit einem zum transparenten Elastomer verschiedenen Brechungsindex polymerisierbar ist, und Polymerisieren des Monomeren, ein lichtstreuendes Material erhalten wird, umfassend eine transparente Elastomermatrix mit einer Glasübergangstemperatur von weniger als Raumtemperatur, in welcher Teilchen aus einem transparenten Material mit einem zur Matrix unterschiedlichen Brechungsindex dispergiert sind. Da dieses lichtstreuende Material eine optisch inhomogene See-Insel-Struktur aufweist, wird in das lichtstreuende Material eintretendes Licht an der Grenzfläche zwischen transparenten Materialien mit unterschiedlichen Brechungsindizes ohne einen wesentlichen Verlust durch Absorption aufgrund der Brechung und Reflexion von Licht gestreut, da das lichtstreuende Material ganz aus transparenten Materialien gebildet ist. Somit wird einfallendes Licht in wirksamer Weise gestreut. Da das lichtstreuende Material hauptsächlich aus der Elastomermatrix mit einer Glasübergangstemperatur von weniger als Raumtemperatur gebildet ist, ist es vollkommen flexibel und leicht zu handhaben und bei Raumtemperatur zu verarbeiten.

Mit dem Ausdruck "Teilchen" ist gemeint, daß das transparente Material eine kugelige, elliptische, stabförmige, plattenförmige oder irgendeine andere erwünschte Form aufweist.

Der Ausdruck "weniger als Raumtemperatur" wird hier in dem Sinne verwendet, daß er Raumtemperatur einschließt.

Ebenso hat sich gezeigt, daß durch Polymerisieren mindestens zweier verschiedener Monomeren, welche unterschiedliche Reaktivität (beispielsweise Reaktionsgeschwindigkeit) besitzen und transparente Polymere mit unterschiedlichen Brechungsindizes bilden, wobei mindestens ein Polymer eine Elastomermatrix mit einer Glasübergangstemperatur von weniger als Raumtemperatur bildet, ein lichtstreuendes Material erhalten wird, welches aus optisch inhomogenen transparenten

Polymeren besteht. Da das untergeordnete Monomer, welches mit dem eine Matrix bildenden Basismonomer vermischt wird, eine unterschiedliche Reaktivität (beispielsweise Reaktionsgeschwindigkeit) von dem Basismonomer aufweist, geht das untergeordnete Monomer im wesentlichen eine Homopolymerisation oder eine Blockcopolymerisation mit dem Basismonomer ein. Die betreffenden Monomeren bilden Kohäsionsstrukturen, welche auf den jeweiligen Polymerisationsketten als Keime ausgebildet wurden. In ein solches lichtstreuendes Material eintretendes Licht wird an der Grenzfläche zwischen den Kohäsionsstrukturen mit unterschiedlichen Brechungsindizes aufgrund Brechung und Reflexion von Licht gestreut, jedoch ohne Verlust durch Absorption, da das lichtstreuende Material vollkommen aus transparenten Materialien gebildet ist. Somit wird einfallendes Licht in wirksamer Weise gestreut. Da das lichtstreuende Material hauptsächlich aus der elastomeren Matrix mit einer Glasübergangstemperatur von weniger als Raumtemperatur gebildet ist, ist es vollkommen flexibel und leicht zu handhaben und bei Raumtemperatur leicht zu verarbeiten.

Gemäß einem ersten Aspekt der Erfindung wird ein lichtstreuendes Material vorgesehen, umfassend eine transparente Elastomermatrix und darin dispergierte Teilchen aus einem transparenten Material. Die transparente Elastomermatrix besitzt eine Glasübergangstemperatur von weniger als Raumtemperatur und das teilchenförmige transparente Material besitzt einen von der Matrix verschiedenen Brechungsindex.

Das oben definierte lichtstreuende Material kann auf verschiedenen Wegen hergestellt werden.

Gemäß einem zweiten Aspekt wird ein lichtstreuendes Material hergestellt durch Vermischen mit und Dispergieren in einer transparenten Elastomermatrix von Teilchen aus einem transparenten Material.

Gemäß einem dritten Aspekt wird ein lichtstreuendes Material hergestellt durch Vermischen mit und Dispergieren in einem Monomer eines transparenten Materials und Polymerisieren des Monomeren. Das Monomer wird zu einem transparenten Elastomer mit einer Glasübergangstemperatur von weniger als Raumtemperatur polymerisiert. Das transparente Material besitzt einen von dem transparenten Elastomer unterschiedlichen Brechungsindex.

Gemäß einem vierten Aspekt wird ein lichtstreuendes Material hergestellt durch Vermischen mit und Dispergieren in einer transparenten Elastomermatrix eines Monomeren und Polymerisieren des Monomeren. Das transparente Elastomer besitzt eine Glasübergangstemperatur von weniger als Raumtemperatur. Das Monomer wird zu einem Polymer mit einem zu dem transparenten Elastomer verschiedenen Brechungsindex polymerisiert.

Gemäß einem fünften Aspekt wird ein lichtstreuendes Material hergestellt durch Polymerisieren mindestens zweier verschiedener Monomeren, welche unterschiedliche Reaktivität besitzen und transparente Polymere mit unterschiedlichen Brechungsindizes bilden, wobei mindestens ein Polymer eine Elastomermatrix mit einer Glasübergangstemperatur von weniger als Raumtemperatur bildet, wodurch ein lichtstreuendes Material gebildet wird, das aus optisch inhomogenen transparenten Polymeren besteht.

Das erfindungsgemäße lichtstreuende Material umfaßt eine transparente Elastomermatrix und darin dispergierte Teilchen aus einem transparenten Material. Die transparente Elastomermatrix besitzt eine Glas-

übergangstemperatur (T_g) von weniger als Raumtemperatur (RT) und das teilchenförmige transparente Material besitzt einen von der Matrix verschiedenen Brechungsindex.

Die transparente Elastomermatrix kann aus transparenten Polymeren mit einer T_g von weniger als Raumtemperatur ($T_g \leq RT$) gewählt werden. Beispielhafte Polymere umfassen Polyvinylacetat, Polyethylen-Vinylacetat-Copolymere, Polyethylen-Polyvinylalkohol-Copolymere, Polyisoprenkautschuk, Polybutadienkautschuk, Styrol-Butadien-Copolymere, Styrol-Butadien-Styrol-Blockcopolymerkautschuk, Styrol-Butadien-Blockcopolymerkautschuk, Styrol-Isopren-Styrol-Blockcopolymerkautschuk, Styrol-Isopren-Blockcopolymerkautschuk, Styrol-Ethylen-Butylen-Styrol-Copolymerkautschuk, Butylkautschuk, halogenierter Butylkautschuk, Chloroprenkautschuk, Acrylkautschuk, EPDM, Acrylnitril-Butadien-Copolymere, Fluoridkautschuk, thermoplastischer Fluoridkautschuk, Siliconkautschuk, Polybuten und Acrylatesterpolymere und -copolymere. Bevorzugte Polymere sind Acrylatesterpolymere und -copolymere mit $T_g \leq RT$, aufgrund deren Transparenz. Beispiele des Alkoholrests, welche den Acrylatester aufbauen, umfassen Alkylreste, wie etwa Methyl-, Ethyl-, Butyl-, Propyl-, Stearyl- und Laurylreste sowie 2-Hexyl-, Cyclohexyl-, Tetrahydrofurfuryl-, Aminoethyl-, 2-Hydroxyethyl-, 3-Hydroxypropyl-, 3-Chlor-2-hydroxypropyl-, und Trifluorethylreste. Ebenso geeignet sind Ester der Acrylsäure mit polyfunktionellen Alkoholen, wie etwa Ethylenglykol, Triethylenglykol, Polyethylenglykol und Trimethylolpropan. Ein zusätzliches mono- oder polyfunktionelles Monomer, welches selbst ein Polymer mit $T_g > RT$ bildet, kann in Kombination mit dem obengenannten Monomer verwendet werden, wenn das resultierende Copolymer $T_g \leq RT$ erfüllt. Beispielhafte zusätzliche Monomere sind Methacrylatesterderivate, welche Alkoholreste, wie oben erwähnt, aufweisen können. Ebenso geeignet sind polymerisierbare Vinylmonomere, einschließlich Styrol, Divinylbenzol, α -Methylstyrol, Vinylacetat, Methylvinylketon, Phenylvinylketon und Vinylbenzoat. Selbst ein Polymer mit $T_g > RT$ kann als Matrix bei der Durchführung der Erfindung verwendet werden, sofern es in einem Weichmacher, Öl oder Lösungsmittel gelöst und gequollen worden ist, so daß $T_g \leq RT$.

In der transparenten Elastomermatrix sind transparente Teilchen mit einem von der transparenten Elastomermatrix verschiedenen Brechungsindex dispergiert. Die Dispersion besitzt eine optisch inhomogene Struktur und stellt ein lichtstreuendes Material dar. Das transparente Elastomer besitzt einen Brechungsindex (n_1) und die Teilchen oder Agglomerate aus dem transparenten Material besitzen einen Brechungsindex (n_2).

Vorzugsweise beträgt der Unterschied zwischen n_1 und n_2 mindestens 0,005, weiter vorzugsweise mindestens 0,01, wenn für das lichtstreuende Material Helligkeit erforderlich ist, am bevorzugtesten mindestens 0,03, wenn eine höhere Helligkeit erforderlich ist. Die Lichtstreuung wäre unzureichend, wenn der Unterschied weniger als 0,005 beträgt. Die obere Grenze des Unterschieds zwischen n_1 und n_2 beträgt vorzugsweise 2. Wenn der Unterschied mehr als 2 beträgt, können die Lichtstreuung zur stark und die Verträglichkeit zwischen der Matrix und den Teilchen verschlechtert sein, wodurch unzureichende lichtstreuende Materialien resultieren. Eines von n_1 und n_2 kann höher als das andere sein, obwohl es bevorzugt ist, daß n_1 höher als n_2 ist.

Die in der transparenten Elastomermatrix zu disper-

gierenden transparenten Teilchen können entweder anorganische oder organische Materialien sein. Beispiele des anorganischen Materials umfassen Pulver, Fasern und Kügelchen aus Quarzglas, Mehrkomponentenglas, Saphir und Quarz. Beispiele des organischen Materials umfassen Polyamide, Polystyrol, Polymethylmethacrylat, Polycarbonat, Polyvinylchlorid, Polyvinylidenchlorid, Polyvinylacetat, Polyethylenvinylacetatcopolymere, Polyvinylalkohol, Polyethylenpolyvinylalkoholcopolymere, Fluoridharze, Silikonharz, Polyisoprenkautschuk, Polybutadienkautschuk, Styrol-Butadien-Copolymere, Butylkautschuk, halogenierter Butylkautschuk, Chloroprenkautschuk, Acrylkautschuk, EPDM, Acrylnitril-Butadien-Copolymere, Fluoridkautschuk, Silikonkautschuk, ABS-Harz, Acrylnitril-Styrol-Copolymerharz, Styrol-Butadien-Copolymere, Acrylnitril-EPDM-Styrol-Terpolymere, Styrol-Methylmethacrylat-Copolymere, Methacrylharz, Epoxyharz, Polymethylpenten, Allyldiglykolcarbonatharz, Spiranharz, amorphes Polyolefin, Polyallylat, Polysulfon, Polyallylsulfonpolyethersulfon, Polyetherimid, Polyimid, Polyethylenterephthalat, Diallylphthalat, Polyestercarbonat, Paraffin, Polybuten und Polyisobutylene, in Pulver-, Faser- oder Kugelform.

Beim Dispergieren des transparenten Materials in der transparenten Elastomermatrix kann das transparente Material in Masseform oder flüssiger Form, beispielsweise durch Kneten oder Mahlen beziehungsweise Walzen in der transparenten Elastomermatrix dispergiert werden. Das flüssige transparente Material kann aus anorganischen oder organischen transparenten Flüssigkeiten gewählt werden, beispielsweise Silikonöl, fluoriertes Öl, flüssiges Paraffin, Ethylenglykol, Polybuten und Polyisobutylene. Die transparenten Materialteilchen besitzen eine Größe (der Abstand, welcher von Licht bedeckt wird, welches entlang der Einfallsschse passiert), welche vorzugsweise um einen Faktor von 0,1 bis 50, weiter vorzugsweise 0,5 bis 20, am meisten bevorzugt 2 bis 10, größer ist als die Wellenlänge des Einfallslights. Wenn die Teilchengröße weniger als das 0,1-fache der Wellenlänge des Einfallslights beträgt, besteht die Wahrscheinlichkeit, daß Rayleigh-Streuung überwiegt, so daß die Lichtstreuung schwächer wird und durch die Licht-Wellenlänge beeinträchtigt wird. Wenn die Teilchengröße mehr als das 50-fache der Wellenlänge des Einfallslights beträgt, neigen die transparenten Materialteilchen zur Agglomeration, wobei das Lichtstreuvermögen verringert wird.

Die Menge der eingemischten transparenten Materialteilchen beträgt vorzugsweise etwa 0,005 bis 50 Teile, insbesondere 0,01 bis 10 Gewichtsteile pro 100 Gewichtsteile der transparenten Elastomermatrix.

Das oben erwähnte lichtstreuende Material kann hergestellt werden durch Vermischen mit und Dispergieren in einer transparenten Elastomermatrix mit $T_g \leq RT$ von Teilchen eines transparenten Materials mit einem von der Matrix verschiedenen Brechungsindex. Die hierbei angewandte Mischtechnik umfaßt das Vermischen mittels einem Mischer oder Extruder, Lösungsmittelgießen, Diffusion durch Quellung oder dergleichen.

Ebenso kann das lichtstreuende Material hergestellt werden durch Vermischen mit und Dispergieren in einem Monomer, welches zu einem transparenten Elastomer mit $T_g \leq RT$ polymerisiert wird, eines transparenten Materials mit einem von dem transparenten Elastomer verschiedenen Brechungsindex und Polymerisieren des Monomeren. Alternativ hierzu kann das lichtstrahlende Material hergestellt werden durch Vermischen

mit und Dispergieren in einer transparenten Elastomermatrix mit $T_g \leq RT$ eines Monomeren, welches zu einem Polymer mit einem von dem transparenten Elastomer verschiedenen Brechungsindex polymerisiert wird und Polymerisieren des Monomeren. Das hierbei verwendete Monomer kann ein einziges Monomer oder eine Mischung aus zwei oder mehreren Monomeren sein, welche ein Copolymer zu bilden vermögen. Die Polymerisation des Monomeren kann in herkömmlicher Weise bewirkt werden.

Um seine Wärmebeständigkeit und chemische Beständigkeit zu verbessern, wird das lichtstreuende Material vorzugsweise vernetzt, falls erforderlich, um seinen dispergierten Zustand zu fixieren. Die Vernetzung kann durch Wärme, ultraviolette Strahlung, Elektronenstrahlen und γ -Bestrahlung erreicht werden. Teilchen oder Agglomerate aus transparentem Material oder die transparente Elastomermatrix können vor der Dispergierung vernetzt werden. Alternativ hierzu kann ein lichtstrahlendes Material gebildet und dann vernetzt werden.

Das Verfahren zur Herstellung eines lichtstreuenden Materials ist nicht auf die oben beschriebenen Fälle beschränkt. Beispielsweise ist es akzeptabel, zwei oder mehrere Monomere unterschiedlicher Reaktivität, wie etwa unterschiedlichen Reaktionsgeschwindigkeiten, zu polymerisieren. Insbesondere werden mindestens zwei unterschiedliche Monomere, welche verschiedene Reaktivität aufweisen und transparente Polymere mit unterschiedlichen Brechungsindizes bilden, polymerisiert, wobei mindestens ein Polymer (resultierend aus einem Basismonomer) eine Elastomermatrix mit einer Glasübergangstemperatur von weniger als Raumtemperatur bildet. Hierbei wird ein lichtstrahlendes Material gebildet, welches aus optisch inhomogenen transparenten Polymeren besteht.

Das eine Matrix des lichtstreuenden Materials bildende Basismonomer kann aus Monomeren gewählt werden, welche zu transparenten Elastomeren oder Polymeren mit $T_g \leq RT$ polymerisieren. Das Polymer kann entweder ein Homopolymer oder ein Copolymer sein. Ferner kann das hierin verwendete Monomer ein einziges Monomer oder eine Mischung aus zwei oder mehreren Monomeren sein, welche zur Bildung eines Copolymeren oder transparenten Elastomeren fähig sind.

Bevorzugte Basismonomere sind aufgrund der Transparenz Acrylatester, welche Polymere (einschließlich Homopolymeren und Copolymeren) mit $T_g \leq RT$ bilden. Beispiele des den Acrylatester aufbauenden Alkoholrests umfassen Alkylreste, wie etwa Methyl-, Ethyl-, Butyl-, Propyl-, Stearyl- und Laurylreste, und 2-Hexyl-, Cyclohexyl-, Tetrahydrofurfuryl-, Aminoethyl-, 2-Hydroxyethyl-, 3-Hydroxypropyl-3-Chlor-2-hydroxypropyl und Trifluorethylreste. Ebenso geeignet sind Ester der Acrylsäure mit polyfunktionellen Alkoholen, wie etwa Ethylenglykol, Triethylenglykol, Polyethylenglykol und Trimethylolpropan. Ein zusätzliches mono- oder polyfunktionelles Monomer, welches selbst ein Polymer mit $T_g > RT$ bildet, kann in Kombination mit dem Basismonomer verwendet werden, wenn bei dem resultierenden Copolymer $T_g \leq RT$. Beispielfhafte zusätzliche Monomere sind Methacrylatesterderivate, welche Alkoholreste, wie oben erwähnt, aufweisen können. Ebenso geeignet sind polymerisierbare Vinylmonomere, einschließlich Styrol, Divinylbenzol, α -Methylstyrol, Vinylacetat, Methylvinylketon, Phenylvinylketon und Vinylbenzoat.

Ein zweites Monomer wird gleichzeitig mit dem Ba-

sismonomer polymerisiert, um eine optisch inhomogene Struktur zu bilden, wobei die Polymermatrix aus dem Basismonomer resultiert. Das zweite Monomer, welches ein Polymer mit einem von der Polymermatrix verschiedenen Brechungsindex bildet, kann irgendein gewünschtes sein, vorzugsweise Acrylsäureesterderivate und Methacrylsäureesterderivate, wie oben für das Basismonomer erwähnt. Das Polymer mit einem von der Polymermatrix verschiedenen Brechungsindex umfaßt Homopolymere und Copolymere. Die Copolymere umfassen diejenigen mit dem Basismonomer. Das zweite Monomer sollte aus solchen Monomeren gewählt werden, welche hinsichtlich der Reaktivität, wie etwa Reaktionsgeschwindigkeit, von dem Basismonomer verschieden sind und welche nach der Polymerisierung eine optisch inhomogene Struktur mit der Polymermatrix, welche aus dem Basismonomer resultiert, bilden.

Die aus dem Basismonomer resultierende Polymermatrix besitzt einen Brechungsindex (n_1) und das Polymer, welches aus dem zweiten Monomer zur Bildung einer optisch inhomogenen Struktur mit der Matrix resultiert, besitzt einen Brechungsindex (n_2). Vorzugsweise beträgt der Unterschied zwischen n_1 und n_2 mindestens 0,005, weiter vorzugsweise mindestens 0,01, wo für das lichtstreuende Material Helligkeit erforderlich ist, am bevorzugtesten mindestens 0,03, wenn eine höhere Helligkeit erforderlich ist. Die Lichtstreuung wäre unzureichend, wenn der Unterschied weniger als 0,005 beträgt. Die obere Grenze des Unterschieds beträgt vorzugsweise 2. Eines von n_1 und n_2 kann höher als das andere sein, obwohl es bevorzugt ist, daß n_1 höher als n_2 ist. Daher sollte das Basismonomer und das zweite Monomer unter Berücksichtigung dieses unterschiedlichen Brechungsindex gewählt werden.

Bei der Durchführung der Erfindung werden die Monomeren mittels einer beliebigen Technik polymerisiert, beispielsweise durch Wärmepolymerisation, Photopolymerisation und Polymerisation durch Aussetzen gegenüber Elektronenstrahlen, γ -Strahlung oder Plasma.

Im Falle einer Wärmepolymerisation können herkömmliche, gut bekannte Katalysatoren in geeigneten Mengen verwendet werden. Beispielhafte Katalysatoren umfassen organische Peroxide, wie etwa 2,5-Dimethylhexan-2,5-dihydroperoxid, 2,5-Dimethyl-2,5-di(t-butylperoxy)hexan-3, Di-t-butylperoxid, t-Butylcumylperoxid, 2,5-Dimethyl-2,5-(t-butylperoxy)hexan, Dicumylperoxid, α,α' -Bis(t-butylperoxyisopropyl)benzol, n-Butyl-4,4-bis(t-butylperoxy)valerat, 2,2-Bis(t-butylperoxy)butan, 1,1-Bis(t-butylperoxy)cyclohexan, 1,1-Bis(t-butylperoxy)-3,3,5-trimethylcyclohexan, t-Butylperoxybenzoat, und Benzoylperoxid; Azoverbindungen, wie etwa Azobisisobutyronitril und Azobiscyclohexanecarbonitril; und Persulfate, wie etwa Kaliumpersulfat, Natriumpersulfat und Ammoniumpersulfat.

Für die Photopolymerisation werden ebenso Katalysatoren verwendet. Geeignet sind Katalysatoren, welche direkt oder indirekt durch Lichteinstrahlung Radikale erzeugen, beispielsweise Benzoin, Benzophenon, Benzoinmethylether, Benzoinethylether, Benzoinpropylether, Benzoinisobutylether, Dibenzyl, 5-Nitroacaphthen, Hexachlorocyclopentadien, para-Nitrodiphenyl, para-Nitroanilin, 2,4,6-Trinitroanilin, 1,2-Benzanthracinon und 3-Methyl-1,3-diaza-1,9-benzanthron.

Die Polymerisation durch Aussetzen gegenüber Elektronenstrahlen, γ -Strahlen oder Plasma schreitet ohne Katalysator voran.

Wenn das Basismonomer und das zweite Monomer polymerisiert werden, werden vorzugsweise 0,005 bis 50

Teile, insbesondere 0,01 bis 10 Gewichtsteile des zweiten Monomeren, pro 100 Gewichtsteile des Basismonomeren verwendet.

Es ist erforderlich, daß das erfindungsgemäße lichtstreuende Material eine optisch inhomogene Struktur besitzt, beispielsweise eine Struktur mit einer dispersen Phase mit einer kugeligen, elliptischen, stabförmigen, plattenförmigen oder anderen Form, dispergiert in einer Matrix in der Weise einer See-Insel-Struktur, sowie eine Lamellenstruktur mit Platten, welche durch Matrixschichten getrennt sind.

Um seine Wärmebeständigkeit und chemische Beständigkeit zu verbessern, ist das lichtstreuende Material vorzugsweise vernetzt, falls erforderlich zur Fixierung des dispergierten Zustandes. Die Vernetzung kann durch Wärme, Ultraviolettstrahlung, Elektronenstrahlen und γ -Bestrahlung bewirkt werden.

Das erfindungsgemäße lichtstreuende Material kann zu jeder erwünschten Form ausgebildet werden, einschließlich Faser-, Stab-, Film-, Platten-, Linsen-, Röhren-, Keil-, Kegel- und Haubenform. In jeder Form kann es in Kombination mit einem lichtdurchlässigen Schlauch oder einem optischen Wellenleiter verwendet werden.

Das erfindungsgemäße lichtstreuende Material kann bei einer Vielzahl von Anwendungen eingesetzt werden, in typischer Weise als Illuminatoren beziehungsweise Beleuchtungskörper und Lichtaustrittselemente in Kraftfahrzeugen, beispielsweise als Kartenlampen, Raumlampen und Spot-Scheinwerfer an der Decke, Kofferraum- bzw. Gepäckraumlichter, Armaturenblechleuchten (beispielsweise Tachometer-, Meßgeräte- und Schalterbeleuchtungen).

Handschuhfachleuchten, Aschenbecherleuchten, Schlüssellochleuchten, Kennzeichenleuchten (direktes Licht und Hintergrundlicht), Emblemleuchten, Antennenpolleuchten, Eckpolleuchten, lineare Beleuchtungskörper für Stoßstange und Seitenbegrenzung. Das Licht aus einer Speziallampe oder die vorhandene Lichtquelle, wie etwa ein Scheinwerfer oder eine Seitenmarkierungslampe im Kraftfahrzeug wird durch einen lichtdurchlässigen Schlauch zu einer Form des erfindungsgemäßen lichtstreuenden Materials geführt, von welchem Streulicht nach außen austritt.

Weiterhin ist die Erfindung ebenso anwendbar als Flächenleuchten in Reklametürmen, Tafeln, Leuchtwänden, Decken und Geschäftsmaschinen (als Hintergrundlicht) sowie als Stabbeleuchten, eingebaut in Schrankaufhängern, Geländern und Fahrradrahmen sowie als Tisch- und Gangleuchten. Andere geeignete Anwendungen umfassen Schiffsschläuche, Notfall-Richtlinien, Entfernungsbzw. Geländeanzeigen auf Golfanlagen sowie Linienmarkierungen in Pools und Sportplätzen. Beim Einsatz zur Streuung von Ultraviolettstrahlung ist die Erfindung in Form von Inkubationslampen in biologischen Kulturbedältern und zur Sterilisation und Reinigung von Wasser in Becken, Pools und Wasserfiltrationsanlagen anwendbar.

Die nachfolgenden Beispiele erläutern die Erfindung. Sämtliche Teile beziehen sich auf das Gewicht.

Beispiel 1

Methylphenylsilikonkautschuk 100 Teile
(Brechungsindex 1,50)

Glaskügelchen 5 Teile

(Durchmesser 10 μ m, Brechungsindex 1,60).

Diese Komponenten wurden in einem Mischer vermischt und zu einem Stab von 10 mm Durchmesser ex-

trusionsgeformt. An einem Ende des lichtstreuenden Stabs wurde Licht eingeführt, wobei es sich gezeigt hat, daß das Licht gleichmäßig vom Stab gestreut wurde. Dieser lichtstreuende Stab war vollkommen flexibel und konnte in jede beliebige Form gebogen werden.

Beispiel 2

Methylphenylsilikonkautschuk 100 Teile
(Brechungsindex 1,50)
Polystyrol (Brechungsindex 1,60) 5 Teile.

Diese Komponenten wurden in einem Mischer vermischt und zu einem Stab von 10 mm Durchmesser extrusionsgeformt. An einem Ende des lichtstreuenden Stabs wurde Licht eingeführt, wobei sich gezeigt hat, daß das Licht gleichmäßig vom Stab gestreut wurde. Dieser lichtstreuende Stab war vollkommen flexibel und konnte in jede gewünschte Form gebogen werden.

Beispiel 3

n-Butylacrylat 100 Teile
Polystyrol 0,2 Teile
Benzoylperoxid 0,2 Teile

n-Butylacrylat (Acrylmonomer), welches zu einem Homopolymer mit $T_g \leq RT$ zu polymerisieren war und ein Polystyrol mit einem von dem Acrylmonomer verschiedenen Brechungsindex wurden vermischt und dispergiert. Die resultierende Flüssigkeitsmischung wurde mit Benzoylperoxid vermischt. Man ließ die Mischung bei 90°C während 96 Stunden polymerisieren.

Beispiel 4

Das Verfahren gemäß Beispiel 3 wurde wiederholt, mit Ausnahme der Verwendung von 2-Ethylhexylacrylat anstelle von n-Butylacrylat und Polymethylmethacrylat anstelle von Polystyrol.

Beispiel 5

Das Verfahren gemäß Beispiel 3 wurde wiederholt, mit Ausnahme der Verwendung von Stearylmetacrylat anstelle von n-Butylacrylat.

Beispiel 6

Das Verfahren gemäß Beispiel 3 wurde wiederholt, mit Ausnahme der Verwendung von Laurylmetacrylat anstelle von n-Butylacrylat und Polystyrololigomer anstelle von Polystyrol.

Beispiel 7

Methylphenylsilikonkautschuk 100 Teile
(Brechungsindex 1,50)
Methylmethacrylat 0,1 Teile
Azobisisobutyronitril 0,2 Teile.

Diese Komponenten wurden in einer Walzenmühle gemahlen und zu einem Stab von 10 mm Durchmesser extrusionsgeformt. Der Stab wurde einer UV-Lampe ausgesetzt, um Methylmethacrylat zu polymerisieren.

Beispiel 8

Nach Bestrahlung mit Elektronenstrahlen wurden die in den Beispielen 1 bis 7 hergestellten lichtstreuenden Materialien lösungsmittelunlöslich. Die Materialien

blieben hinsichtlich der Flexibilität und dem Lichtstreuvermögen gegenüber den vor der Elektronenexposition im wesentlichen unverändert.

Die in den Beispielen 3 bis 7 hergestellten lichtstreuenden Materialien wurden zu Stäben mit 10 mm Durchmesser geformt. An einem Ende der Stäbe wurde Licht eingeführt, wobei es sich gezeigt hat, daß das Licht gleichmäßig von den Stäben über eine Länge von 1 mm gestreut wurde. Diese lichtstreuenden Stäbe waren vollkommen flexibel und konnten in jede beliebige Form gebogen werden.

Beispiel 9

Butylacrylat (M1) 100 Teile
Cyclohexylmethacrylat (M2) 25 Teile
n-Butylmercaptan 0,2 Teile
Azobisisobutyronitril 0,2 Teile.

Eine flüssige Mischung aus diesen Komponenten, das heißt eine vorwiegend ein Acrylmonomer (M1) enthaltende Mischung, welche zu einem Homopolymer mit $T_g \leq RT$ zu polymerisieren war und ein anderes Monomer (M2) mit einem von dem Acrylmonomer verschiedenen Brechungsindex und einer verschiedenen Reaktionsgeschwindigkeit wurden bei 70°C während 96 Stunden polymerisiert.

Beispiel 10

Das Polymerisationsverfahren gemäß Beispiel 9 wurde wiederholt, mit Ausnahme der Verwendung von 2-Ethylhexylacrylat als M1 und Cyclohexylmethacrylat als M2.

Beispiel 11

Das Polymerisationsverfahren gemäß Beispiel 9 wurde wiederholt, mit Ausnahme der Verwendung von Stearylmetacrylat als M1 und Trimethylolpropantrimethacrylat als M2.

Beispiel 12

Das Polymerisationsverfahren gemäß Beispiel 9 wurde wiederholt, mit Ausnahme der Verwendung von Laurylmetacrylat als M1 und Trimethylolpropantrimethacrylat als M2.

Die in den Beispielen 9 bis 12 hergestellten lichtstreuenden Materialien wurden zu Stäben mit 10 mm Durchmesser geformt. An einem Ende wurde Licht in die Stäbe eingeführt, wobei es sich gezeigt hat, daß das Licht gleichmäßig von den Stäben über eine Länge von 1 mm gestreut wurde. Diese lichtstreuenden Stäbe waren vollkommen flexibel und konnten in jede beliebige Form gebogen werden.

Nach Bestrahlung mit Elektronenstrahlen wurden die in den Beispielen 9 und 10 hergestellten lichtstreuenden Materialien lösungsmittelunlöslich. Die Materialien blieben hinsichtlich der Flexibilität und dem Lichtstreuvermögen gegenüber denen vor der Elektronenbestrahlung im wesentlichen unverändert.

Gemäß der Erfindung wird ein lichtstreuendes Material erhalten, welches flexibel ist, leicht zu handhaben und zu verarbeiten ist, in wirksamer Weise das Licht streut und zur Verwendung mit einem lichtdurchlässigen Schlauch geeignet ist. Das lichtstreuende Material kann bei geringen Kosten in einfacher Weise hergestellt werden.

Patentansprüche

1. Lichtstreuendes Material, umfassend eine transparente Elastomermatrix mit einer Glasübergangstemperatur von weniger als Raumtemperatur und darin dispergierten Teilchen aus einem transparenten Material mit einem zur Matrix unterschiedlichen Brechungsindex. 5
2. Verfahren zur Herstellung eines lichtstreuenden Materials, umfassend die Stufe des Vermischens von Teilchen aus einem transparenten Material mit einer transparenten Elastomermatrix, um die Teilchen in der Matrix zu dispergieren, wobei das Elastomer eine Glasübergangstemperatur von weniger als Raumtemperatur besitzt und das transparente Material einen zur Matrix unterschiedlichen Brechungsindex aufweist. 10 15
3. Verfahren zur Herstellung eines lichtstreuenden Materials, umfassend die Stufen des Vermischens eines transparenten Materials mit einem Monomer, um das transparente Material in dem Monomer zu dispergieren, wobei das Monomer zu einem transparenten Elastomer mit einer Glasübergangstemperatur von weniger als Raumtemperatur polymerisierbar ist und wobei das transparente Material einen zum transparenten Elastomer unterschiedlichen Brechungsindex aufweist, und des Polymerisierens des Monomeren. 20 25
4. Verfahren zur Herstellung eines lichtstreuenden Materials, umfassend die Stufen des Vermischens eines Monomeren mit einer transparenten Elastomermatrix, um das Monomer in der Matrix zu dispergieren, wobei das transparente Elastomer eine Glasübergangstemperatur von weniger als Raumtemperatur aufweist und das Monomer zu einem Polymer mit einem zu dem transparenten Elastomer unterschiedlichen Brechungsindex polymerisierbar ist, und des Polymerisierens des Monomeren. 30 35 40
5. Verfahren zur Herstellung eines lichtstreuenden Materials, umfassend die Stufe des Polymerisierens mindestens zweier unterschiedlicher Monomeren, welche unterschiedliche Reaktivität besitzen und transparente Polymere mit unterschiedlichen Brechungsindizes bilden, wobei mindestens ein Polymer eine Elastomermatrix mit einer Glasübergangstemperatur von weniger als Raumtemperatur bildet, wodurch ein aus optisch inhomogenen transparenten Polymeren bestehendes lichtstreuendes Material gebildet wird. 45 50

55

60

65

- Leerseite -